非線形光学効果を用いた超短パルス光の波長変換

Nonlinear optical frequency conversion of ultrashort light pulses

黒田 和男
東京大学生産技術研究所

1　はじめに

レーザー技術の重要な分野の一つに超短パルスの発生と，その応用がある。電気的に作ることのできる最短のパルスは，周波数にして 100 GHz 程度，時間幅にして 10 ps (10^{-11} s) 程度が限界である。これに対し，光のパルスでは，数 fs (10^{-15} s) 程度の非常に短いパルスを作ることが可能である。波長 0.6 μm の赤色光の振動の周期は 2 fs であるから，振動の回数が２回以下の光を作ることが可能なのである。このような極限的な光パルスの生成には大掛かりな装置が必要であるが，100 fs から数 10 fs ぐらいのパルス光であれば市販の装置で生成することが可能になっている。このような超短パルス光は高速現象の計測など科学計測用に使われている。さて，このような超短パルスレーザーは非常に限られていて（現在最もよく使われるのは中心波長が 800 nm の Ti:サファイアレーザー），計測に必要な波長がレーザー発振波長と合わない場合が多く，ここでも波長変換が重要な意味を持つ。

超短パルスの波長変換で重要なことは２つある。第１に，非線形光学材料に限らないが，光学材料中をパルスが伝搬すると，分散の効果および非線形光学効果（主に自己位相変調効果）により，波形が変化することである。この効果は基本的に避けられないので，使いたい場所で最短パルスが発生するように，光学系全体を設計する。これをパルス整形という。

第２に，パルスが含む全ての周波数成分に対し位相整合条件を満たす必要がある。すなわち，広帯域位相整合条件（または色消しともいう）を満たさなくてはならない。位相不整合量は非線形光学材料の厚さに比例するから，パルスが広帯域になるほど，材料は薄くしなくてはならないということになる。変換効率は厚さの２乗に比例するから，効率が著しく落ちることにもなる。それを如何に落とさずに波長変換するかということがポイントになる。

2　パルスの成り立ち

時間幅 $\Delta\tau$ のパルスは, 周波数領域では, スペクトル幅 $\Delta\Omega$ 内の周波数成分の全てがある時刻 ($t = 0$) に同位相で重なったものであると考えられる。$\Delta\tau$ の時間が経過すると，周波数成分の間に $\Delta\Omega\Delta\tau$ の位相差が生じる。これが π 程度の大きさになると，弱まりの干渉で振幅が小さくなる。よって，時間幅とスペクトル幅は反比例の関係にある。これを

$$\Delta\tau\Delta\nu = k \tag{1}$$

と表す。$\Delta\Omega = 2\pi\Delta\nu$ である。定数 k はパルス波形によって異る。表１に２つのパルス波形の例を挙げる。ただし，時間幅とスペクトル幅は強度分布のピーク値の半分の値におけるパルスの全幅（半値全幅）をとったときの値である。

表１　パルス波形と $k = \Delta\tau_{1/2}\Delta\nu_{1/2}$ 値

	Gaussian 型	sech 型
時間振幅	$e^{-(t/\tau)^2}$	$\mathrm{sech}(t/\tau)$
$\Delta\tau_{1/2}$	1.177τ	1.763τ
周波数振幅	$e^{-(\tau\omega/2)^2}$	$\mathrm{sech}(\pi\tau\omega/2)$
$2\pi\Delta\nu_{1/2}$	$2.355/\tau$	$1.122/\tau$
$\Delta\tau_{1/2}\Delta\nu_{1/2}$	0.441	0.315

3　時間位相とスペクトル位相

パルスを考えるとき，位相は大変重要である。時間領域でパルスの複素振幅を $E(t)=\sqrt{I(t)}e^{-i\Psi(t)}$ と表すとき，$\Psi(t)$ を（時間）位相という。平均的な周波数（中心周波数）を ω_0 とすると，位相は，中心周波数の単振動の位相 $\omega_0 t$ に平行して増大する。平均的な位相からのからのずれ $\psi(t)=\Psi(t)-\omega_0 t$ を考えることが多い。位相の時間微分を瞬時周波数という。

$$\tilde{\omega}=\frac{d\Psi}{dt}=\omega_0+\frac{d\psi}{dt} \tag{2}$$

次に周波数成分を考える。信号 $E(t)$ の周波数成分は，信号のフーリエ変換で与えられる。これを

$$\tilde{E}(\omega)=\int E(t)e^{i\omega t}dt=\sqrt{S(\omega)}e^{-i\phi(\omega)} \tag{3}$$

と表すとき，$S(\omega)$ をパワースペクトル (power spectrum)，$\phi(\omega)$ をスペクトル位相という。式 (1) が成り立つ限界パルスは，スペクトル位相が一定値を取るときに実現する。スペクトル幅が与えられたときに，時間幅を最小にすることをパルス整形 (pulse shaping) という。パルス整形は，基本的には，スペクトル位相を測定し，それが一定になるようにいろいろなパラメータを制御することにより実現される。

スペクトル位相の制御には，プリズムや回折格子などの分散素子で入射光を分光し，位相差をつけてから，元に戻す方法が用いられる。図 1 は 2 つのプリズムを上下逆転して置き，周波数により光路長を変える素子である。プリズムへの入射位置やプリズム間の距離を調整することにより，スペクトル位相の変化量を調整できる。2 つの回折格子を組み合わせても同様な素子を作ることができる。

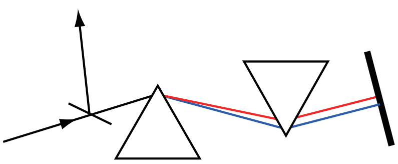

図 1　プリズム対

4　Wigner 分布関数

コヒーレントな超短パルスのイメージを掴むのには Wigner 分布関数 (Wigner distribution) が良い。超短パルスは時間領域でも周波数領域でも局在している。時間と周波数を同時に見る方法が Wigner 分布関数である。光の電場を $E(t)$ とすると，Wigner 分布関数は

$$\rho(t,\omega)=\int_{-\infty}^{\infty}E\Big(t+\frac{\tau}{2}\Big)E^*\Big(t-\frac{\tau}{2}\Big)e^{i\omega\tau}d\tau \tag{4}$$

で定義される[*1]。これは時刻 t における，周波数 ω の成分の「大きさ」を表すと解釈できる。式 (4) の複素共役をとっても元と同じになるから，Wigner 分布関数は実関数である。ただし，符号は正負どちらも取ることが可能である。負の大きさというのは理解できないが，これは次のような事情による。時間と周波数は相補的な量であり，同時に確定値を取ることはできない。これは量子力学の不確定性原理 (uncertainty principle) に通じる考え方である。そのため，ある時刻におけるある周波数成分の大きさというのは原理的に決めることができない量であるから，それが負の値を取ったとしても矛盾が生じるわけではない。

図 2 は，横軸に時間 t，縦軸に角周波数 ω をとった位相空間 (phase space) における Wigner 関数を図示したものである（概念図）。Wigner 関数は位相空間に分布している。これを時間軸から見たとき，すなわち，周波数 ω で積分すると，強度の時間変化 $I(t)$ が得られる。また，周波数軸に射影すると，パワースペクトル $S(\omega)$ が得られる。

この Wigner 関数は，位相空間において変形はできるが圧縮しない粘土のようなものであると考えられる。粘土の塊を時間軸方向にぎゅーと押しつぶすと，周波数方向にはみ出た分が伸びてしまう。こうして，時間幅とスペクトル幅の積が一定値以下にならないという式 (1) が直感的に理解できる。

[*1] Wigner 分布関数は本来は分布関数に対して定義される関数である。上に導入した関数は，電場強度に拡張した Wigner 分布関数もどきである。しかし大いに役に立つ。

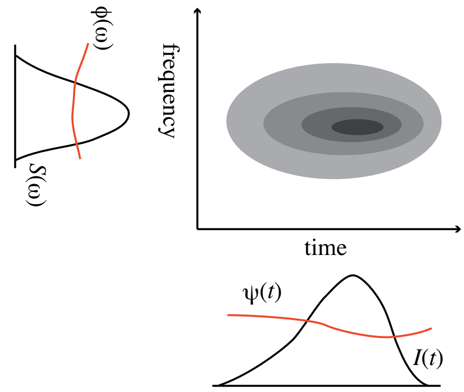

図 2　Wigner 関数。$I(t), \psi(t)$：パルス波形と位相，$S(\omega), \phi(\omega)$：パワースペクトルとスペクトル位相

5　モードロックレーザー

前節で，超短パルスは，ある時刻で全てのスペクトル成分の位相が揃うように成り立っていると述べた。レーザーでは，光の共振器があるため，とびとびのスペクトルが得られる。この場合でも，スペクトルの並びが等間隔で，ある時刻に全てのスペクトルの位相が揃えば，超短パルスが得られる。とびとびの各成分をモードという。単純に考えると，長さが L，屈折率が n の共振器の第 j 番目のモードの周波数 ν_j は

$$\nu_j = j\frac{c}{2Ln} \tag{5}$$

となる。分母の 2 は，光は共振器を往復して元に戻るので，光路長は共振器長の 2 倍になるからである。実際の発振周波数は，レーザー媒質があるため，上の値から僅かにずれる。そのため，モードは等間隔には並ばない。特に，等間隔に並び，各モードの位相が揃った状態を，モードロック (mode lock) 状態という。このとき，レーザー光は周期的なパルスになる。その周期は，モード間隔の逆数 $2Ln/c$ になる。レーザー増幅のスペクトル幅が十分広ければ，多数のモードが発振し，パルス幅は狭くなる。実際，発振モード数を N とすると，パルス幅は周期のおよそ $1/N$ になる。この状態で発振するレーザーをモードロックレーザーという。

6　屈折率分散と群速度

分散媒質中の光パルスの伝搬について考えよう。光パルスは，分散媒質中ではパルスを構成する各周波数成分が異なる速度で伝わるため，伝搬によりスペクトル成分の相対位相が変化する。

簡単のため，分散媒質の入口 $(z = 0)$ で，時刻 $t = 0$ に全てのスペクトル成分の位相が一致したとする。入射光のパルス幅を $\Delta\tau$，スペクトル幅を $\Delta\Omega$ とする。$\Delta\Omega\Delta\tau \approx 1$ の関係がある。さて，長さ L の分散媒質を通過した後のスペクトル位相は $\phi = \omega t - kL$ で与えられる。

分散が無視できれば，パルスの位相速度を $v_p = c/n$ と置いて，$k = \omega/v_p$ である。よって，スペクトル位相は $\phi = \omega(t - L/v_p)$ となるから，$t = L/v_p$ にパルスのピークが分散媒質の出口に到達する。分散が無視できれば，パルス波形は変化しない。

分散があるとどうなるか。波動ベクトル k を，中心周波数 ω_0 の回りで展開する。$\omega = \omega_0 + \Delta\omega$ として

$$\begin{aligned} k(\omega) &= k(\omega_0) + \frac{dk}{d\omega}\Delta\omega + \frac{1}{2}\frac{d^2k}{d\omega^2}\Delta\omega^2 + \cdots \\ &\equiv \frac{\omega_0}{v_p} + \frac{1}{v_g}\Delta\omega + \frac{1}{2}k_2\Delta\omega^2 + \cdots \end{aligned} \tag{6}$$

と書く。第 1 項の $v_p = c/n(\omega_0)$ は中心周波数における位相速度である。第 2 項の v_g は群速度 (group velocity) で

$$\frac{1}{v_g} = \frac{dk}{d\omega} = \frac{1}{c}\frac{d(\omega n)}{d\omega} = \frac{n_g}{c} \tag{7}$$

と書ける。ただし，n_g は群屈折率で

$$n_g = \frac{d(\omega n)}{d\omega} = n + \omega\frac{dn}{d\omega} = n - \lambda\frac{dn}{d\lambda} \tag{8}$$

で与えられる。正常分散領域 $(dn/d\omega > 0)$ では，$n_g > n$ で，群速度は位相速度より小さくなる。横軸に k，縦軸に ω をプロットしたグラフを分散曲線という。群速度は，分散曲線の接線の傾きに等しい。一方，位相速度は原点から分散曲線上の点まで引いた直線の傾きに等しい。

さて，式 (6) を代入すると，スペクトル位相は

$$\phi(\omega) = \omega_0\Big(t - \frac{L}{v_p}\Big) + \Delta\omega\Big(t - \frac{L}{v_g}\Big) + \frac{1}{2}k_2 L\Delta\omega^2 + \cdots \tag{9}$$

と書ける。$\Delta\omega$ の 1 次の項まで考えよう。時刻 $t = L/v_g$ で，スペクトル位相は $\Delta\omega$ に依らず一定値をとる。すなわち，この時刻に，全てのスペクトル成分の位相が揃うから，パルスのピーク位置が出口に到達したことになる。このことから，パルスのピーク位置は群速度 v_g で進むことが判る。これが群速度の物理的な意味である。

長さ L の媒質を群速度 v_g でパルスが進んだとき，通過に要する時間 T は

$$T = \frac{L}{v_g} \tag{10}$$

である。これを群遅延 (group delay) と呼ぶ。

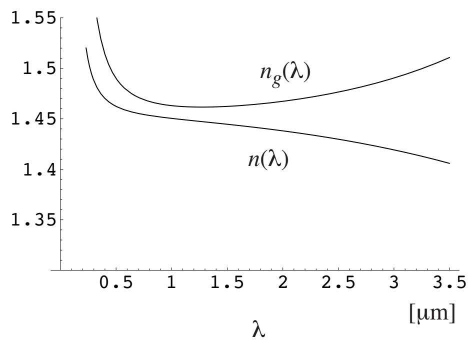

図 3　石英ガラスの屈折率 $n(\lambda)$ と群屈折率 $n_g(\lambda)$

7　群速度分散

展開 (6) の 2 次微分の項は，群速度が周波数によって変化する割合を表すから，群速度分散 (group velocity dispersion) と呼ぶ。実際には，式 (6) にある通り，k_2 は群速度の逆数，すなわち，群遅延の周波数分散の大きさを与える。群遅延の周波数拡がりは結果的にパルス幅の増大を意味する。時間幅 $\Delta\tau$ のパルスのスペクトル拡がりは $\Delta\Omega \approx 1/\Delta\tau$ であるから，群遅延の変化 ΔT は

$$\Delta T = k_2 \Delta\Omega L = \frac{k_2 L}{\Delta\tau} \tag{11}$$

となる。ハルス幅は $|\Delta T|$ 程度増加すると考えられる。

図 4 は石英ガラスの群速度分散をプロットしたものである。この図で k_2 の単位は $\mathrm{fs}^2/\mathrm{mm}$ にとってある。幅 $\Delta\tau$ fs のパルスが長さが L mm の媒質中を通過した後のパルス幅の増大分 ΔT fs は，式 (11) に数値のそのまま代入すれば得られる。例えば，石英ガラスの波長 0.8 μm における群速度分散は $k_2 = 36\ \mathrm{fs}^2/\mathrm{mm}$ である。これから，パルス幅 10 fs のパルスが石英ガラス中を 1 mm 進むと，パルス幅は 3.6 fs だけ拡がることになる。なお，図 4 で明らかなように，群速度分散の符号は正負どちらもある。

群速度分散によるパルス幅伸長 $|\Delta T|$ が元のパルス幅 $\Delta\tau$ と同程度になるとき，パルス波形への影響が無視できなくなる。このようなことが起こる媒質の長さを分散長 (dispersion length)L_D といい

$$L_D = \frac{\Delta\tau^2}{|k_2|} \tag{12}$$

で与えられる。

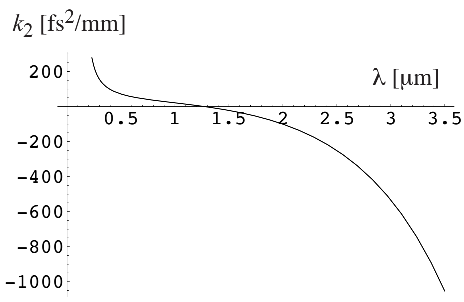

図 4　石英ガラスの群速度分散 $k_2(\lambda)$

8　チャープ信号

前節の議論で，群速度分散によりパルスが伸びることが分かった。この現象は時間領域ではどのようにみえるのであろうか。$k_2 > 0$ のときを考える。このとき，周波数の高い成分の群速度が小さくなる。すなわち，分散媒質の出口には，周波数の低い成分が早く到達し，周波数の高い成分が遅れる。よって，周波数が時間とともに変化するような信号

が観測される。このように，一つのパルスの中で周波数が変化する信号をチャープ (chirp) 信号という (図 5)。時間の経過に伴い周波数が増大する信号を正のチャープ，あるいはアップチャープという。逆の場合が，負チャープまたはダウンチャープである。$k_2 > 0$ のときは正のチャープが生じる。

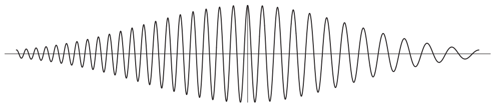

図 5　チャープ信号

チャープ信号を位相空間の Wigner 分布関数で表すと図 6 のようになる。この図から，チャープ信号は位相空間における分布関数の回転によって生じることが判る。よって，逆向きに回転すれば，チャープを補償することができる。

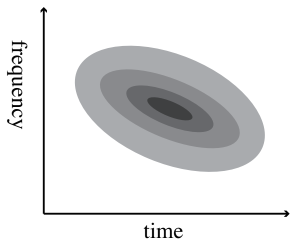

図 6　チャープ信号の Wigner 分布関数

9　自己位相変調

光パルスはパルス幅が狭くなると，ピーク値は非常に高くなる。その結果，非線形光学効果が無視できなくなる。特にパルスの伝搬に影響があるのは，屈折率が光強度に比例して変化する非線形屈折率効果である。屈折率を n，光強度を I とすると

$$n = n_0 + n_2 I \tag{13}$$

となる。n_2 を非線形屈折率と呼ぶ。光パルスの強度変化を $I(t)$ とすると，媒質中を伝搬する光の (時間）位相は

$$\Psi(t,z) = \Psi_0(t,z) - \frac{\omega}{c} n_2 I(t - z/v_g) z \tag{14}$$

となる。ただし，Ψ_0 は非線形効果がないときの位相である。非線形効果により，光強度に比例した位相変化が付け加わることになる。これを自己位相変調 (self phase modulation) という。

瞬時周波数を位相の時間微分で定義する。式 (14) を微分して

$$\tilde{\omega} = \frac{d\Psi}{dt} = \omega - \frac{\omega n_2 z}{c}\frac{d}{dt} I(t - z/v_g) \tag{15}$$

となる。すなわち，瞬時周波数が，時間とともに変化する。これもチャープ信号の一種である。図 7 は $n_2 > 0$ の場合の自己位相変調効果をプロットしたものである。図から分かる通り，この場合，パルスのピークの近くでは正のチャープ信号となる。

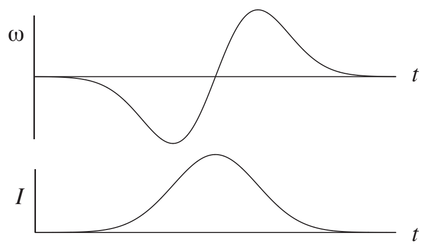

図 7　自己位相変調 ($n_2 > 0$)。（上）瞬時周波数，（下）パルス波形。

この結果は定性的には次のように理解できる。$n_2 > 0$ としよう。非線形屈折率の効果で，光パルスのピーク位置での屈折率は，光が弱いパルスの裾に比べ大きくなる。ということは，光の速度を考えると，屈折率の高いピークの方が裾より遅くなる。よって，媒質中の伝搬すると，前半部分はパルスは伸び，後半部分は縮むことになる。その結果，前半では周波数が低くなり，後半では周波数は高くなる。すなわち，正のチャープ信号となる。

非線形効果による波数の変化は $\Delta k = \omega \Delta n / c = \omega n_2 I / c$ である。位相変化が 1 程度となる伝搬距離 L_{NL} を非線形長 (nonlinear length) といい

$$L_{NL} = \frac{c}{\omega n_2 I} = \frac{cA}{\omega n_2 P} \tag{16}$$

で与えられる。ここで，P はピークパワー，A はビームの断面積である。

群速度分散も自己位相変調も，媒質を通過した光にチャーピングを起こす点で似ているが，その働きは対称的である。すなわち，群速度分散ではスペクトル位相が変化してパルス波形が拡がるが，自己位相変調では時間位相が変化してスペクトルが拡がる。よって，スペクトル位相を制御してパルス整形すると，群速度分散では元のパルス波形に戻るだけであるが，スペクトルが拡がる自己位相変調では元のパルスより幅の狭いパルスが得られる。これをパルス圧縮 (pulse compression) という。この違いは，群速度分散が線形現象で受動的であるのに対し，自己位相変調が非線形現象で能動的であることによる。

9.1 自己収束

非線形屈折率効果が光ビームの空間形状に対しても大きな影響を及ぼす。通常のビームは中心が強く，周辺に行くほど弱くなる。非線形効果により，中心部分と周辺で屈折率が変化し，レンズ効果が生じる。$n_2 > 0$ のときは，中心部分の屈折率が高くなるから凸レンズになり，光の強度分布は中心に収束する。これを自己収束 (self focusing) という。逆に，$n_2 < 0$ のときは凹レンズになり，光の強度分布は外に拡がる。これを自己発散 (self defocusing) という。

自己収束が起こると，中心部分の強度が増大し，凸レンズ効果がさらに大きくなる。このように，正のフィードバックが生じ，光ビームは伝搬によって急速に収束し，最終的に，非線形効果と回折の効果が釣り合うところまで進行する。実は，この最終状態は，不安定であることが知られている。このため，強い自己収束が起こると，光ビームは不規則なパターンに変化してしまう。

10 ソリトン

群速度の正常分散領域では $k_2 > 0$ で，透過光は正にチャーピングが起こる。一方，多くの材料で非線形屈折率 n_2 は正になる (自己収束型)。この場合も透過光は正にチャープする。ところが，2 つの係数が異符号になる場合，すなわち，異常分散領域で自己収束型の場合か，または，正常分散領域で自己発散型の場合，2 つの効果が釣り合い，パルスが波形を保ったまま，長い距離を伝搬することが可能になる。このように安定に存在するパルスをソリトン (soliton) という[*2]。拡散長と非線形長が異符号でほぼ等しくなるときに釣り合いの条件が満たされる ($L_D \approx -L_{NL}$)。式 (12) と式 (16) から

$$I\Delta\tau^2 \approx -\frac{ck_2}{\omega n_2} \tag{17}$$

という関係が得られる。これから，ソリトンパルス波形の面積は $\sqrt{I}\Delta\tau$ に比例し，これは $\sqrt{-k_2/n_2}$ に比例する一定値をとることがわかる。

光ソリトンは非線形シュレーディンガー方程式 (nonlinear Schrödinger equation) の解で[*3]，最も低次の解（1 ソリトン解）は sech 関数で表される。

11 群速度整合条件

さて，非線形波長変換の話に戻ろう。第 2 高調波発生の位相整合条件は，基本波と 2 倍波の位相速度が等しくなること，すなわち，$v_p(\omega) = v_p(2\omega)$ が成り立つことで，屈折率で書けば $n(\omega) = n(2\omega)$ である。これに対し，群速度整合条件は，基本波と 2 倍波の群速度が一致する条件 $v_g(\omega) = v_g(2\omega)$，すなわち，群屈折率が等しくなる条件である。時空間領域で考えれば，群速度整合条件は，基本波と 2 倍波が同じ速度で伝搬しなければならないという当然の条件である。もしも群速度が一致しなければ，基本波と 2 倍波は離れてしまい，結果的に 2 倍波のパルス幅は拡がることになる（図 8)。これを時間的ウォークオフ (temporal walk off) という。

この現象は周波数領域では，位相整合条件の成り立つスペクトル幅がパルスのバンド幅より狭くなり，伝搬により光パルスのスペクトルが狭帯域化することに相当する。広帯域の位相整合条件は

[*2] 光の非線形効果は，1 次元では安定で時間ソリトンが形成されるが，自己収束の項で述べたように 2 次元では不安定になり，安定な空間ソリトンは形成されない。

[*3] 説明は抜きにして，形だけ書くと，群速度で進む座標系においてソリトンの振幅 u に対し

$$i\frac{\partial u}{\partial z} = \frac{1}{2}k_2\frac{\partial^2 u}{\partial t^2} - \frac{\omega n_2}{c}|u|^2 u$$

$2k(\omega_0+\Delta\omega)=k(2\omega_0+2\Delta\omega)$ が少なくとも $\Delta\omega$ の 1 次の項まで成り立つことである。1 次の項の係数が群速度の逆数になるから，群速度整合が成り立てば，1 次の係数が 0 になる。ところが，群速度不整合があると，$\Delta\omega$ の 1 次のオーダーで位相整合条件が破られるから，基本波のスペクトルの中心部分しか位相整合条件を満たさず，スペクトル狭帯域化が起こる。これは，時間幅が延びるのと等価である。

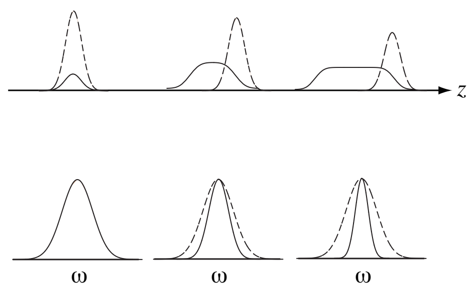

図 8　群速度不整合。（上）時空間領域，（下）周波数領域。

12　固有群速度整合

改めて，屈折率および群屈折率の分散を考えよう。先に掲げた図 3 を見て欲しい。これは石英ガラスの分散を図示したものであるが，多くの光学材料の分散は定性的に同じような形をとる。波長が長くなると，屈折率は単調に減少するが，群屈折率には極小値が存在する。この波長を零分散波長という。零分散波長を挟んで両側で群屈折率は増大する。従って，零分散波長よりも短い波長 λ_1 と，零分散波長より長い波長 λ_2 で $n_g(\lambda_1)=n_g(\lambda_2)$ を満たす波長のペアが存在する。その中に，たまたま $\lambda_1=\lambda_2/2$ を満たすペアが存在すれば，第 2 高調波発生で群速度整合が成り立つ。これを固有群速度整合 (intrinsic group velocity matching) という。材料によって群速度整合が成り立つ波長が一つに決まってしまい，柔軟性に欠けるのが欠点である。また，群速度整合が成り立つ波長で，同時に位相整合条件は満たされないが，これは擬似位相整合法で解決できる。この意味で，固有群速度整合は擬似位相整合と抱き合わせてはじめて意味のある方法である。

12.1　例

周期反転ニオブ酸リチウム (PPLN) を用いた第 2 高調波発生の例を挙げる。はじめに，LN の屈折率と群屈折率の分散を図 9 に示す。横軸は，波長の代わりに，その逆数である波数 $\sigma=1/\lambda$ でプロットしてある[*4]。単位は $\mu\mathrm{m}^{-1}$ である。LN は負の一軸結晶である。PPLN では，光電場が c 軸方向を向いた異常光線か，電場は c 軸に垂直な常光線を用いる。この配置では c 軸となす角度は 0° か 90° で，途中の角度をとることはない。

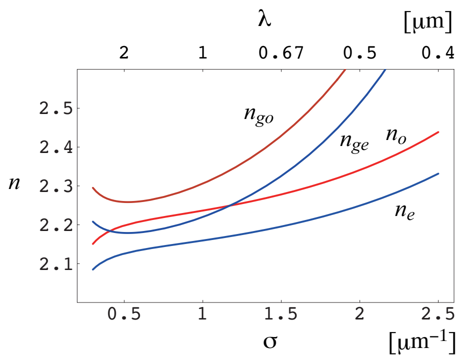

図 9　LN の屈折率と群屈折率

図 10 は第 2 高調波発生の波数不整合 $\Delta k/2\pi$ と群屈折率の差（群速度不整合）Δn_g をプロットしたものである。横軸は基本波の波数である。縦軸は，波数不整合については $\mu\mathrm{m}^{-1}$ の単位を用いた。群屈折率差は無次元量である。

Type I の位相整合（基本波が常光線，2 倍波が異常光線，非線形光学定数は d_{31}）では，波数不整合を基本波の波数 σ で表すと

$$\frac{\Delta k}{2\pi}=2\sigma\left[n_e(2\sigma)-n_o(\sigma)\right] \tag{18}$$

となる。さらに，群屈折率差は，上式を σ で微分した量の 1/2 に等しい。図 10 から，基本波の波数が $\sigma=0.62\mu\mathrm{m}^{-1}(\lambda=1.6\mu\mathrm{m})$ で $\Delta n_g=0$ となり，固有群速度整合が起こることが読み取れる。この波長で $\Delta k/2\pi$ は最小値 $-0.0431\mu\mathrm{m}^{-1}$ をとる。これから，擬似位相整合格子の周期は 23.2μm となるこ

*4 波数表示では，群屈折率は $n_g=d(\sigma n)/d\sigma$。

とが分かる。また，Type 0 の配置（基本波も 2 倍波も異常光線，非線形光学定数は d_{33}）では，基本波の波数がおよそ $\sigma = 0.37\mu\mathrm{m}^{-1} (\lambda = 2.7\mu\mathrm{m})$ で固有群速度整合が起こる。

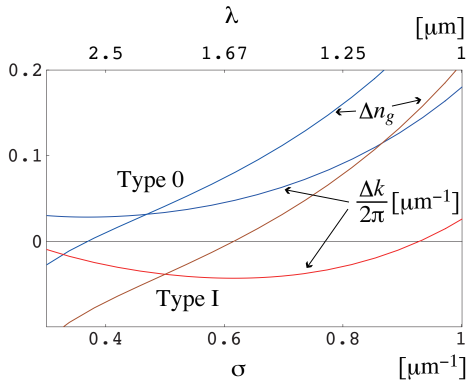

図 10　LN の固有群速度整合

13　角度分散を用いた広帯域位相整合

次に角度位相整合の広帯域化の話に移ろう。結晶の複屈折を利用した角度位相整合では，位相整合角 θ は入射光の周波数 ω の関数になる。そこで図 11 のように，あらかじめ分散素子で分光し，各周波数成分が正しい位相整合角で入射するように設計すれば，広帯域位相整合条件 (broadband phase matching) または色消し (achromatic) 位相整合条件が満たされる。これを角度分散 (spectral angular dispersion) の方法という。

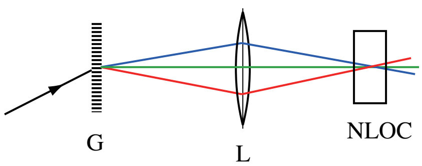

図 11　角度分散

14　パルス面傾斜

角度分散法は実空間ではどのように見えるのか考えよう。図 12 のように，回折格子 G にパルス光が入射する。パルス面 AD は入射光線に垂直になっている。回折格子を通過した後の，周波数 ω 成分の波動ベクトルを $\boldsymbol{k}(\omega)$ とする。回折後のパルス面は $\boldsymbol{k}(\omega)$ の先端の軌跡に垂直になる。事実，先端の軌跡は $d\boldsymbol{k}/d\omega$ に平行であり，パルス面はこれに直交する。幾何光学的には，群速度で測った光路長がパルスの各点で等しいから $\overline{ABC} = \overline{DEF}$ が成り立つ。群速度は図の v_g の方向であるから，パルス面は進行方向に垂直にはならず，傾いた状態で進む。これをパルス面傾斜 (pulse front tilt) という。

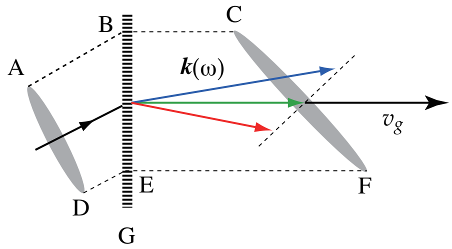

図 12　パルス面傾斜

14.1　パルス面傾斜と群速度

群速度は分散関係 $\omega = f(\boldsymbol{k})$ の勾配

$$\boldsymbol{v}_g = \mathrm{grad}_{\boldsymbol{k}}\omega = \begin{pmatrix} \partial\omega/\partial k_x \\ \partial\omega/\partial k_y \\ \partial\omega/\partial k_z \end{pmatrix} \tag{19}$$

で与えられる。これは，曲面に接する平面を表す幾何学的な関係であるから，$\Delta\omega = \boldsymbol{v}_g \cdot \Delta\boldsymbol{k}$ の関係が，角度分散の有無に関係なく成り立つ。故に，角度分散について

$$\frac{d\boldsymbol{k}}{d\omega} \cdot \boldsymbol{v}_g = 1 \tag{20}$$

が成り立つ。これは，図 13 に示すように，群速度のパルス面に垂直な成分の大きさが，$|d\boldsymbol{k}/d\omega|^{-1}$ に等しいことを意味する。

15　角度分散による群速度整合

角度分散があるときの位相整合条件は，ベクトル表示で $\boldsymbol{k}(2\omega) - 2\boldsymbol{k}(\omega) = 0$ と書ける。広帯域条件はその微分で

$$\frac{d\boldsymbol{k}}{d\omega}(2\omega) - \frac{d\boldsymbol{k}}{d\omega}(\omega) = 0 \tag{21}$$

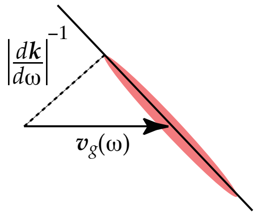

図 13　パルス面傾斜と群速度

と表される。，この条件はパルス面傾斜の見方で解釈すると，図 14 のようになる。基本波と 2 倍波で群速度は異なるが，パルス面が傾斜することにより，基本波と 2 倍波のパルス面が平行になり重なる。さらに，群速度のパルス面に垂直な成分は基本波と 2 倍波で等しくなり，パルスが伝搬してもパルス面は重なったままである。こうして群速度整合が達成される。ただし，基本波と 2 倍波の群速度の方向が異なるから，パルス面に平行な方向にずれて行くのは避けられない。言い換えれば，時間的ウォークオフを空間的ウォークオフに転換したことになる。超短パルスでは，時間的ウォークオフはパルス幅の伸長をもたらすが，空間的なウォークオフは変換効率が低下し，空間パターンが少し横に拡がるだけで，パルス幅の伸長は抑えられる。

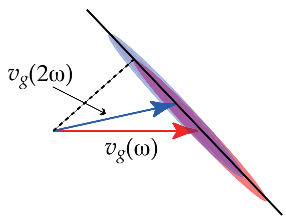

図 14　角度分散による群速度整合

16　角度分散に起因する群速度分散

群速度分散 k_2 の効果で，伝搬長が拡散長 (12) を超えると，パルス幅が拡がることを述べた。角度分散を導入すると，これに起因して新たに群速度分散が生じる。群速度分散は $\boldsymbol{k}$ ベクトルの 2 階微分で与えられる。よって，角度分散を考慮して $\boldsymbol{k}(\omega)$ を 2 回微分すれば，角度分散が存在するときの群速度分散が求められる。途中の計算を省略して結果だけを示すと，群速度分散は

$$\tilde{k}_2 = k_2 - k\left(\frac{d\theta}{d\omega}\right)^2 \tag{22}$$

となる。第 1 項は材料に固有の群速度分散，第 2 項が角度分散 $d\theta/d\omega$ によって新たに付け加わった群速度分散の項である。実効的な群速度分散が大きくなると，分散長 (12) が短くなり，これが結晶長を制限する主要な因子になる。

17　非平行配置擬似位相整合

PPLN を使った第 2 高調波発生では，Type I の位相整合で波長 1.6μm で固有群速度整合がとれるが，Type 0 ではそうはいかない。どちらにしても，固有群速度整合は適用できる波長が材料によって決まってしまい，欲しい波長で使えないという欠点がある。ところで，角度位相整合では角度分散の方法で位相整合条件の広帯域化が可能であった。擬似位相整合でも基本波と擬似位相整合格子の方向が平行にならない非平行配置にすれば，角度分散の方法が使えるようになる。

第 2 高調波発生を考えよう。擬似位相整合の格子ベクトルを $\boldsymbol{K}$，基本波の波動ベクトルを $\boldsymbol{k}_1$，2 倍波の波動ベクトルを $\boldsymbol{k}_2$ とすると，擬似位相整合条件は

$$\boldsymbol{k}_2 = 2\boldsymbol{k}_1 + \boldsymbol{K} \tag{23}$$

となる (図 15)。擬似位相整合条件が広いスペクトルで成り立つためには，上式の微分も 0 になることが必要な条件である。

$$\frac{d\boldsymbol{k}}{d\omega}(2\omega) = \frac{d\boldsymbol{k}}{d\omega}(\omega) \tag{24}$$

これは角度位相整合の場合の式 (21) と全く同じになり，同じ技術が非平行擬似位相整合に使えることを意味する。

17.1　設計

ここで，設計のあらましを紹介しよう。周波数の代わりに波数 $\sigma = \omega/2\pi c$ を用いる。媒質の屈折率を $n(\sigma)$ とする。PPLN では異常光線を用いるから，ここでの屈折率は異常光線屈折率であるが，簡

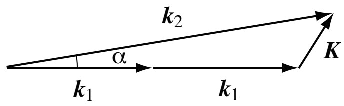

図 15　非平行配置擬似位相整合条件

単のため添字 e は省略する。波動ベクトル方向の単位ベクトルを $\boldsymbol{t}$ とする。波動ベクトルは

$$\frac{\boldsymbol{k}}{2\pi} = \sigma n \boldsymbol{t} \tag{25}$$

と表される。ベクトル $\boldsymbol{t}$ は2次元平面内で回転するから，$\boldsymbol{t} = (\sin\theta, \cos\theta)$ と書ける。これを θ で微分すると，$d\boldsymbol{t}/d\theta \equiv \boldsymbol{t}_\theta$ は $\boldsymbol{t}$ に直交する単位ベクトルになる ($\boldsymbol{t} \cdot \boldsymbol{t}_\theta = 0$)。これを用いると

$$c\frac{d\boldsymbol{k}}{d\omega} = n_g \boldsymbol{t} + \sigma n \frac{d\theta}{d\sigma}\boldsymbol{t}_\theta \tag{26}$$

と書ける。ここで，n_g は群屈折率である。この式に $\boldsymbol{t}$ をかけることで，式 (20) が直接確かめられる。また，パルス面の傾き角 ρ は

$$\tan\rho = \frac{\sigma n}{n_g}\frac{d\theta}{d\sigma} \tag{27}$$

で与えられる。

設計パラメーターとして，中心周波数における基本波と2倍波の間の角度 α をとる。擬似位相整合の式 (23) より，格子ベクトルの大きさ，すなわち，格子間隔の逆数が，次のように与えられる。

$$\left(\frac{K}{2\pi}\right)^2 = 4\sigma_1^2\left(n_1^2 + n_2^2 - 2n_1 n_2 \cos\alpha\right) \tag{28}$$

ここで，σ_1 は基本波の中心波数，$n_j, (j = 1, 2)$ はそれぞれ，基本波および2倍波の屈折率である。

次に，群速度整合条件 (24) は

$$n_{g1}\boldsymbol{t}_1 + \sigma_1 n_1 \frac{d\theta_1}{d\sigma_1}\boldsymbol{t}_{\theta 1} = n_{g2}\boldsymbol{t}_2 + \sigma_2 n_2 \frac{d\theta_2}{d\sigma_2}\boldsymbol{t}_{\theta 2} \tag{29}$$

となる。ただし，$\sigma_2 = 2\sigma_1$ である。式の両辺に $\boldsymbol{t}_2$ をかけると，$\boldsymbol{t}_1 \cdot \boldsymbol{t}_2 = \cos\alpha$，$\boldsymbol{t}_{\theta 1} \cdot \boldsymbol{t}_2 = \sin\alpha$ となることを用いて，基本波の角度分散とパルス面傾斜が次のように求まる。

$$\begin{aligned} \tan\rho_1 &= \frac{\sigma_1 n_1}{n_{g1}}\frac{d\theta_1}{d\sigma_1} = \frac{n_{g2} - n_{g1}\cos\alpha}{n_{g1}\sin\alpha} \\ &= \frac{v_{g1} - v_{g2}\cos\alpha}{v_{g2}\sin\alpha} \end{aligned} \tag{30}$$

最後の式は，群速度 $v_g = c/n_g$ で表示した。この式の幾何学的な意味は図 16 から明らかであろう。

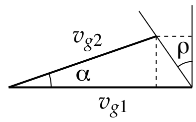

図 16　パルス面傾斜と群速度

同様に2倍波の角度分散も計算できる（1 と 2 を入れ替え，α の符号を変える）。これから，2倍波の角度分散を補償するのに必要な回折格子の周期が計算できる。

以上のように，角度 α が決まれば全てのパラメーターが決定できる。α は，次のような点を考慮して決定する。ウォークオフを小さくするという意味では，α は小さい方がよい。しかし，α が小さくなると，式 (30) の分母に $\sin\alpha$ があることから明らかであるが，パルス面傾斜が大きくなる。一方，格子間隔の逆数は式 (28) で与えられる。これから，α が小さいほど，格子間隔は広くなり，分極反転構造の作成が容易になることが分かる。以上の点を考慮して，角度 α を決定する。

18　まとめ

前半では，非線形光学効果を用いた波長変換の基礎的な事柄を述べた。後半では，特に超短パルスの波長変換に着目し，そこで使われるいろいろな技術の基礎を紹介した。媒質の分散関係が波長変換に本質的に重要であることが，分かっていただけたと思う。